

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-154534

(43)Date of publication of application : 08.06.1999

(51)Int.Cl.

H01M 10/40

H01M 2/16

H01M 4/02

(21)Application number : 09-318512

(71)Applicant : ASAHI CHEM IND CO LTD

(22)Date of filing : 19.11.1997

(72)Inventor : NAMIKATA TAKASHI  
YOKOYAMA CHOMEI

## (54) LITHIUM ION SECONDARY BATTERY ELEMENT

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain high energy density, high safety, and high reliability by laminating positive and negative electrodes with a specific width via a separator composed by holding an lithium ion on a specific polymer matrix, and specifying a plane of an active substance layer of an electrode and an area of a thin layer.

SOLUTION: A polymeric gel in which a lithium ion electrolyte is held on a polymer matrix of 20 to 80% in gel component rate containing vinylidene polyfluoride or its copolymer is used as a separator, and positive and negative electrodes are laminated via this gel. At this time, a relationship among width  $W_s$  of the separator, a width  $W_c$  of the negative electrode, and width  $W_a$  of the positive electrode is  $W_s > W_c \geq W_a$ . Further, an electrode active substance layer is provided on a power collector surface, and a planar area of its uniform thickness and a thin or non-thin layer area are provided alternately in band shape in longitudinal direction, and positive and negative electrodes are provided. At this time, a relationship between lengths  $L_a$  and  $L_c$  in the planar areas of the positive and negative electrodes and lengths  $l_a$  and  $l_c$  of the thin-layer area is  $L_a + L_c = l_a + l_c$ ,  $L_a \leq L_c$  ( $l_c$  may be 0), and at least one part of the thin area is folded at about 180 degrees.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-154534

(43)公開日 平成11年(1999)6月8日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

H 0 1 M 10/40

H 0 1 M 10/40

Z

2/16

2/16

Z

4/02

4/02

B

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 11 頁)

(21)出願番号

特願平9-318512

(71)出願人 000000033

旭化成工業株式会社

大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号

(22)出願日

平成9年(1997)11月19日

(72)発明者 南方 尚

静岡県富士市鮫島2番地の1 旭化成工業株式会社内

(72)発明者 横山 朝明

静岡県富士市鮫島2番地の1 旭化成工業株式会社内

(54)【発明の名称】 リチウムイオン二次電池要素

(57)【要約】

【課題】 正極／セパレータ／負極が積層された構造のリチウムイオン二次電池においてパッキング効率が高く、コンパクトに充填された高エネルギー密度の電池であり、高安全性、高信頼性、生産性に優れた軽量、薄型が容易なリチウムイオン二次電池要素とその電池、製造法を提供する。

【解決手段】 ゲル分率20～80%の架橋されたポリ弗化ビニリデンまたは弗化ビニリデン共重合体を含むポリマーゲルをセパレータとして、正極および負極が積層・一体化された構造において、電極の活物質層が集電体上に帯状に形成され、この活物質ゾーンサイズを規定することにより積層体を折り曲げ構造に加工できる電池要素とこの製法およびこれを外装体にパッケージした電池。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 正極と負極をセパレータを介して積層してなる電池要素において、該セパレータが、ポリ弗化ビニリデンおよび／または弗化ビニリデン共重合体を含むゲル分率 20～80%のポリマーマトリックスにリチウムイオン電解液を保持させてなるポリマーゲルからなり、該セパレータ、負極、正極の幅が下記 (I) 式で表される関係を有し、

$$W_s > W_c \geq W_a \quad (I)$$

(式中、 $W_s$  はセパレータの幅を、 $W_c$  は負極の幅を、 $W_a$  は正極の幅を表す。)

且つ、正極および負極が、それぞれの電極活物質層を集電体表面に形成してなるものであって、少なくとも正極において、活物質層の厚さが均一である領域 (平面領域) と該活物質層の厚さが平面領域より薄いまたは活物質層のない領域 (薄層領域) とを長手方向に交互に帯状に有しており、正極と負極の対向する薄層領域と平面領域の長さが下記 (I I) 式と (I I I) 式を満足しており、

$$L_a + l_a = L_c + l_c \quad (I I)$$

$$L_a \leq L_c \quad (I I I)$$

(式中、 $L_a$  は正極の平面領域の長さを、 $L_c$  は負極の平面領域の長さを、 $l_a$  は正極の薄層領域の長さを、 $l_c$  は負極の薄層領域の長さを表し、 $l_c = 0$  であっても良い。)

更に、この電池要素が少なくとも 1 箇所、上記薄層領域で約 180° 折り曲げられた構造を有することを特徴とするリチウムイオン二次電池要素。

【請求項 2】 正極と負極をセパレータを介して積層してなる電池要素において、正極および／または負極の長手方向末端のセパレータ対向表面に、帯状絶縁層 (絶縁領域) を有することを特徴とする請求項 1 記載のリチウムイオン二次電池要素。

【請求項 3】 集電体上に薄層領域および平面領域を形成して正極と負極を作成した後に、該正極の平面領域が該負極の平面領域に対向した構造で該正極負極間にセパレータを挟み込み、加熱融着させて積層一体化することを特徴とする請求項 1 記載のリチウムイオン二次電池要素の製造法。

【請求項 4】 集電体シート上に薄層領域、平面領域および帯状の絶縁領域を形成して正極シートと負極シートを形成した後に、該正極シートの平面領域が負極シートの平面領域に対向した構造で該正極シート負極シート間にセパレータを挟み込み、加熱融着させて電極シートとセパレータを積層一体化し、その後に上記絶縁領域で積層体を切断することを特徴する請求項 2 記載のリチウムイオン二次電池要素の製造法。

【請求項 5】 集電体または集電体シート上に平面領域の厚みで均一に活物質層を形成した後に、該活物質層の一部を帯状に剥離または研削して薄層領域を形成するこ

とを特徴とする請求項 3 または 4 記載のリチウムイオン二次電池要素の製造法。

【請求項 6】 請求項 1 または 2 記載のリチウムイオン二次電池要素の集電体露出面の一部を電極端子とした構造、または該集電体露出面に電極端子が接続された構造を有するリチウムイオン二次電池要素を、該電極端子の一部を外部に露出させてポリマーシート積層体でパッケージしてなるリチウムイオン二次電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は電池要素およびその製造法、ならびにこれを用いた電池に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 現在、パソコン、携帯電話、ビデオカメラなど種々の携帯機器に用いる電源として高エネルギー密度電池が開発されている。この電池として繰り返し充放電使用可能なリチウムイオン二次電池、ニッケル水素電池、ニッケルカドミウム電池などが利用されている。特にリチウムイオン二次電池はエネルギー密度が大きいことが特徴であり、電池の小型軽量化が可能であるため活発な開発が進められている。

【0003】 従来、リチウムイオン二次電池は電極間のイオン移動媒体として電解液が用いられ、通常は電極とポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィン多孔質セパレータの積層体に電解液が含浸された構造を有している。しかしながら、電極と該セパレータは一体化しておらず、電極空孔部およびセパレータからの液漏れを防ぐため電池パッケージに重厚な金属材料が用いられている。また、高容量化を図る目的で、九十九折りに折畳み込んだ正極／セパレータ／負極積層構造も提案されている (特開平 5-101830 号公報、特開平 8-64225 号公報、特開平 9-7610 号公報)。この場合もセパレータと電極とが一体化しておらず、積層体の電極間のイオン輸送のコンタクトを保持するために、完全密閉した外装体や外部応力を印加する必要があり、金属缶に封入された折畳み電極構造の電池も提案されている (特開平 5-283107 号公報)。また、電極積層のために熱融着工程を行った場合には空孔部分が閉塞し、イオン輸送不能となるという問題もあった。

【0004】 これに対して、ポリ弗化ビニリデン等を含むポリマーゲルをイオン移動媒体とする電池は、従来の電解液をイオン移動媒体とする電池に比べ、電極とセパレータが一体化しているため実質的に液漏れがなく、また、シート状の電極とポリマーゲルが積層された積層体や電極表面にポリマーゲル層を塗布形成後積層させた積層対を所定の形状に加工して作製することができることから、電極／セパレータ／電極積層体の直列接続積層による高電圧化も期待され、電極／セパレータ／電極の積層体の構造として、捲回構造や折り曲げ構造 (米国特許

第5478668号明細書、特開平2-168560号公報、特開平5-121099号公報）も提案されている。

【0005】しかしながら、これら従来のポリ弗化ビニリデン等を含むポリマーゲルを用いた電池では、セパレータとして用いているポリ弗化ビニリデン等のポリマーは、熱安定性に乏しく、高温で熔融することから、電極とセパレータの積層一体化加工における熱融着により電極間短絡が起こりやすいという問題とともに、電池使用時の誤作動によって過充電や短絡などを起こした場合、急激な温度上昇に伴い電極間短絡が起こる恐れもあった。また、電極／セパレータ／電極を積層した後、捲回構造や折り曲げ構造を作製する際、折り曲げ部でセパレータや電極が変形を受けやすく、電極間短絡に至ることもあり問題であった。さらに、折り曲げ部分の積層体で厚くなりやすく、電池としてかさばった構造となりやすいという問題もあった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、パッキング効率が高く、コンパクトに充填された高エネルギー密度とともに加工時および使用時の電極間短絡を起こさない高安全性、高信頼性を有するリチウムイオン二次電池要素、及び該二次電池要素の生産性に優れた製造法を提供することを目的とする。さらに、電極とセパレータの積層構造において電極セパレータが密着一体化した電池要素構造を有し、簡便軽量のパッケージが利用できる軽量、薄型を特徴とするリチウムイオン二次電池を提供することも目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記課題を解決するために電池積層体構造の研究を進め、本発明に至った。即ち、本発明は、(1) 正極と負極をセパレータを介して積層してなる電池要素において、該セパレータが、ポリ弗化ビニリデンおよび／または弗化ビニリデン共重合体を含むゲル分率20～80%のポリマーマトリックスにリチウムイオン電解液を保持させてなるポリマーゲルからなり、該セパレータ、負極、正極の幅が下記(I)式で表される関係を有し、

$$W_s > W_c \geq W_a \quad (I)$$

(式中、 $W_s$ はセパレータの幅を、 $W_c$ は負極の幅を、 $W_a$ は正極の幅を表す。)

且つ、正極および負極が、それぞれの電極活物質層を集電体表面に形成してなるものであって、少なくとも正極において、活物質層の厚さが均一である領域(平面領域)と該活物質層の厚さが平面領域より薄いまたは活物質層のない領域(薄層領域)とを長手方向に交互に帯状に有しており、正極と負極の対向する薄層領域と平面領域の長さが下記(II)式と(III)式を満足しており、

$$L_a + l_a = L_c + l_c \quad (II)$$

(3)

特開平11-154534

$$L_a \leq L_c$$

(III)

(式中、 $L_a$ は正極の平面領域の長さを、 $L_c$ は負極の平面領域の長さを、 $l_a$ は正極の薄層領域の長さを、 $l_c$ は負極の薄層領域の長さを表し、 $l_c = 0$ であっても良い。)

更に、この電池要素が少なくとも1箇所、上記薄層領域で約180°折り曲げられた構造を有することを特徴とするリチウムイオン二次電池要素、(2) 正極と負極をセパレータを介して積層してなる電池要素において、正極および／または負極の長手方向末端のセパレータ対向表面に、帯状絶縁層(絶縁領域)を有することを特徴とする上記1のリチウムイオン二次電池要素、(3)

集電体上に薄層領域および平面領域を形成して正極と負極を作成した後に、該正極の平面領域が該負極の平面領域に対向した構造で該正極負極間にセパレータを挟み込み、加熱融着させて積層一体化することを特徴とする上記1のリチウムイオン二次電池要素の製造法、(4)

集電体シート上に薄層領域、平面領域および帯状の絶縁領域を形成して正極シートと負極シートを形成した後

に、該正極シートの平面領域が負極シートの平面領域に対向した構造で該正極シート負極シート間にセパレータを挟み込み、加熱融着させて電極シートとセパレータを積層一体化し、その後に上記絶縁領域で積層体を切断することを特徴とする上記2のリチウムイオン二次電池要素の製造法、(5) 集電体または集電体シート上に平面領域の厚みで均一に活物質層を形成した後に、該活物質層の一部を帯状に剥離または研削して薄層領域を形成することを特徴とする上記3または4のリチウムイオン二次電池要素の製造法、(6) 上記1または2のリチウムイオン二次電池要素の集電体露出面の一部を電極端子とした構造、または該集電体露出面に電極端子が接続された構造を有するリチウムイオン二次電池要素を、該電極端子の一部を外部に露出させてポリマーシート積層体でパッケージしてなるリチウムイオン二次電池、を提供するものである。

【0008】以下、本発明のリチウムイオン二次電池要素、電池要素の製法、リチウムイオン二次電池、電池の製法について説明する。本発明のリチウムイオン二次電池要素は正極、負極、セパレータから構成され、正極と負極がセパレータを介して積層された構造を有し、この電池要素において少なくとも一箇所折り曲げられた構造を持つものである。

【0009】本発明の電池要素において、正極、負極、セパレータの幅が以下の関係を満たすことが必要である。本発明において折り曲げ線と直角方向を長手方向という。すなわち、セパレータの長手方向と直角方向の幅を $W_s$ 、負極の長手方向と直角方向の幅を $W_c$ 、正極の長手方向と直角方向の幅を $W_a$ とした場合、 $W_s > W_c \geq W_a$  (I)

である。正極、負極間の短絡を抑制するために正極、負



極の電極幅よりセパレータが幅広いことが必要であり、また、正極に対向する部分に必ず負極が存在することが、充放電の繰り返しの放電容量低下抑制に必要である。後者は負極充電における負極表面の金属リチウム析出を抑制する効果を有し、安全性向上に寄与するものである。本発明の効果を奏するには、この幅のマージン

( $W_s - W_c$ ) は、下限として電極活物質層の厚み以上、好ましくは2倍以上であり、この上限としては好ましくは電極活物質層厚みの20倍以下、さらに好ましくは10倍以下である。また、正極幅と負極幅のマージン ( $W_c - W_a$ ) の上限は好ましくは電極活物質層の厚さの20倍以下であり、さらに好ましくは10倍以下である。下限はセパレータ厚さにより異なるが、好ましくは電極活物質層の厚さ以上である。

【0010】また、本発明の電池要素を構成する電極である正極、負極は、金属集電体シート上に電極活物質層が形成されてなる電極であり、少なくとも正極は、その長手方向に活物質層の膜厚が厚く且つ均一厚で形成された領域（平面領域）と、電極活物質の膜厚の薄いまたは活物質層のない領域（薄層領域）とが交互に帯状に形成された構造を有することが必要であり、正極、負極ともに上記平面領域と薄層領域を有することが好ましい。

【0011】本発明の電池要素は、薄層領域を有する構造である電極とセパレータが積層され一体化された構造で、この薄層領域でほぼ180°折り曲げられる構造を有する。通常の均一膜厚の電極活物質層を有した電極を用いた積層体では、この折り曲げ部分でセパレータや電極活物質層が応力を受け、該電極活物質層の構造変形やセパレータの変形、場合によっては電極間短絡につながることもあり、また、電極活物質層やセパレータの変形を伴わない場合は180°折り曲げができないため電池要素として膨らんだ構造となってしまう、かさばった構造となるという問題があった。本発明の電池要素においては折り曲げ部分の電極活物質層の厚さを薄くし、この折り曲げにおける応力を低減することで、折り曲げ部分の膨らみが低減でき、上記の問題が大幅に解消され、ほぼ180°折り曲げが可能となったものである。

【0012】本発明におけるこの薄層領域の長手方向の長さは、平面領域の電極活物質層の厚さの2倍以上100倍以下が好ましく、さらに好ましくは5倍以上50倍以上である。また、薄層領域の活物質層の膜厚は、好ましくは平面領域の膜厚の半分以下、さらに好ましくは1/4以下である。活物質層の膜厚を順次変化させた断面がV字構造、U字構造を持つ構造でも効果を持つ。この場合は活物質層の膜厚は、平均膜厚さが上記の範囲であれば良い。この薄層領域に活物質のない構造、若干活物質が残存した構造も利用でき本発明の電池要素に含まれる。

【0013】また、本発明の電池要素における正極および負極の薄層領域と平面領域の長手方向の長さは、正極

の平面領域の長手方向の長さを $L_a$ 、負極の平面領域の長手方向の長さを $L_c$ 、正極の薄層領域の長手方向の長さを $l_a$ 、負極の薄層領域の長手方向の長さを $l_c$ とした場合、次の式を満たすことが必要である。

$$L_a + l_a = L_c + l_c \quad (I I)$$

$$L_a \leq L_c \quad (I I I)$$

前者の式は折り曲げ構造の正極と負極の周期を揃え、はみ出しを小さくするとともに、薄層領域の周期を一致させて前記の折り曲げにおける応力、変形を低減させる効果を有する。この平面領域の長さは設計する電池のサイズによって調整することができる。また、負極の平面領域長さを正極の対向する平面領域長さより長くすることは、負極表面の平面領域周辺部の充放電における金属リチウム析出を抑制する効果がある。この( $L_c - L_a$ )のマージンは好ましくは平面領域の電極活物質層厚以上100倍以下、さらに好ましくは電極活物質層厚の2倍以上50倍以下である。また、本発明の電池要素における電極として集電体の片面に活物質層を形成した電極、集電体の両面に活物質層を形成した電極のいずれも利用可能であり、集電体の両面に活物質層を形成した場合には両面における平面領域と薄層領域が一致することが好ましい。

【0014】本発明の電池要素は、長手方向と直角方向に設けられた薄層領域で少なくとも1箇所折り曲げられた構造であることが必要であり、長手方向の末端部分の電極のセパレータに対向する表面に絶縁層が帯状に形成されている構造を有することが好ましい。この絶縁層によって電池要素末端での電極間短絡を防止することができる。この絶縁層の材料として、たとえば、ポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィン、ポリスチレン、ポリエステル、ポリフェニレンオキシド、ポリフェニレンサルファイド、ナイロン、ポリカーボネート、ポリイミドなどの絶縁材料が利用できる。この絶縁層は形成後イオンバリア性を有することが好ましく、電解液成分で膨潤しない性質を持つことが好ましい。これらの絶縁層を熱融着、塗布などの方法によって電極表面に層形成することができる。また、絶縁層を形成する領域の活物質層を絶縁層形成前に一部除去した集電体面に絶縁層を形成させることができる。絶縁層の長手方向の幅は、加工方法により異なるが電極活物質層厚さの2倍以上200倍以下である。また絶縁層材料によって異なるが好ましくは10 $\mu$ m以上、1mm以下である。

【0015】本発明の電池要素の製造法は、集電体表面に電極活物質層の平面領域、薄層領域を設けて作製された電極もしくは電極シートとセパレータを正極／セパレータ／負極の構成で積層・一体化する工程を含むものである。この積層・一体化の方法として、平板プレス、ロールまたはベルトによるラミネーションプレスなどが挙げられ、積層時に加熱して電極－セパレータ積層体間を融着させることが好ましい。この加熱温度は、セパレー

タにポリフッ化ビニリデンやフッ化ビニリデン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体を含むポリマーゲルを用いた場合、80℃以上130℃以下である。また電極表面に粘着物塗布などを併用してもよい。現在、リチウムイオン二次電池に多用されるポリエチレンやポリプロピレンなどのポリオレフィンの微多孔膜をセパレータに用いた場合、電極積層体が一体化されておらず積層によりコンタクトするのみであったため、電極間のイオン輸送を行なう（電極積層体の要素間コンタクトをとる。）ために、積層体を密閉して外装したり、また弱く外部応力を継続印加する必要がある。また、このポリオレフィンセパレータを用いて、前記のラミネーションプレスや平板プレスによる積層体の要素間の密着化・一体化を行なった場合、ポリオレフィンセパレータの孔構造が加熱や応力によって閉塞し、これにともなってイオン伝導度が低下してしまうことが問題であった。これに比べて、本発明で用いられるゲル分率20～80%の架橋されたポリフッ化ビニリデンおよび／またはフッ化ビニリデン共重合体を含むセパレータは、従来のポリオレフィンセパレータの積層体一体化工程における問題がないため電池性能に優れた電池が得られ、一体化しているためにパッケージに軽量なポリマーシート積層体を利用できるため好ましい。

【0016】また、電極の形状として、短冊状、長尺状いずれも利用可能である。このうち長尺状の電極およびセパレータをラミネーションによって連続的に積層する方法は、ロール段数、加熱条件など調整しながら高速積層できるので好ましい。電極形状が短冊状、長尺状いずれの場合においても、電極の長手方向の末端部分の電極表面に前記の絶縁層を設置して電極間の短絡を防止することができる。

【0017】短冊状または長尺状の電極を複数有する電極シートを用いて電池要素を製造する場合、電極ユニットと隣の電極ユニットの境界に絶縁層を設けて電極シートを作製した後に、該電極シートとセパレータとを積層・一体化し、該絶縁層領域でユニットセルを切断して電池要素を得ることができる。この切断において絶縁層存在により電極間の短絡を防止できる。この方法は、長尺の電極シートを用いてセパレータと積層・一体化した後に、一つの電池要素当たり1回の切断で電池要素が作製できるため生産性が高く好ましい製造方法である。

【0018】長尺の電極および電極シートは、長手方向に平面領域と薄層領域を交互に帯状に有する。この長尺の電極および電極シートの作製法として、集電体表面上に、平面領域の活物質層厚みに相当する厚みで均一に活物質層を形成し、プレスにより活物質層の密度を調整した後、この活物質層の一部を帯状に剥離または研削して薄層領域を形成する方法が利用できる。この剥離、研削方法として、電極活物質層が活物質粒子と樹脂バインダーから形成される場合、バインダーに可溶な溶剤で剥離

を行なう方法、機械的な研磨、応力により活物質層を研削して部分的に薄層化することができる。

【0019】また、電極活物質層の一部をマスク、エッチングする方法、予め下層に溶出可能な層を形成した後リフトオフする方法などで剥離することができる。また部分塗工法によって電極活物質層を部分的に形成した電極および電極シートや、電極活物質層を短冊状シートの形体で集電体および集電体シート上に所定間隔で設置した後に電極活物質層と集電体とを密着させて作製した電極および電極シートも本発明の電池要素の製造に用いることができる。

【0020】本発明において用いられる活物質、集電体について説明する。正極の活物質としては、リチウムイオンの電気化学的なドーピング、脱ドーピングが可能な電気化学的な電位の高い物質であり、例えば、コバルト酸リチウム、マンガン酸リチウム、ニッケル酸リチウム、コバルト・ニッケル酸リチウム、リチウムバナジウム複合酸化物、ニオブ酸リチウムなどの遷移金属リチウム複合酸化物、リチウムチタン硫化物、リチウムモリブデン硫化物、リチウムセレン化ニオブなどの金属カルコゲナイド、ポリピロール、ポリチオフェン、ポリアニリン、ポリアセン化合物、ポリアセチレン、ポリアリレンビニレン、ジチオール誘導体、ジスルフィド誘導体などの有機化合物、およびこれらの混合体を挙げることができる。正極の集電体として、金属アルミニウム、金属アルミニウム／ポリマー積層体、ステンレス、カーボン、チタンなどを用いることができるが、金属アルミニウムが加工性、量産性の点から好ましい。

【0021】本発明で用いられる集電体の厚みは、電気抵抗や加工における力学的強度により異なるが、好ましくは5μm以上30μm以下である。また平面領域の電極活物質層の厚みは、1mm以下5μm以上である。また、負極の活物質として、上記正極に対して電気化学的に低い電位を有するリチウムイオンの電気化学的なドーピング、脱ドーピング可能な材料を用いる。この例として、グラファイト、コークス、不定形炭素などの炭素系材料、すず系複合酸化物、シリカ系複合酸化物などの複合酸化物、酸化チタン、酸化鉄などの金属酸化物のリチウム固溶体、リチウム窒化マンガン、リチウム窒化鉄、リチウム窒化ニッケル、リチウム窒化銅、リチウム窒化アルミニウムなどの窒化物などのセラミックスが用いられる。負極集電体としては、金属銅、ニッケル、銅やニッケルメッキしたポリマー材料、ステンレス、炭素などを用いることができる。このうち金属銅は電気抵抗が低く、リチウムドーピングを受けにくく耐久性に優れるため好ましい。

【0022】上記の活物質を所定の形状に加工して電極を構成する。この形態として集電体表面に活物質粉末をバインダーで分散結合させた形態、活物質をたとえば薄膜とした連続体の形態が挙げられる。粉末状の活物質を



バインダーで分散した形態では、集電体と電極活物質層との電気抵抗を低減するため、カーボン、金属などの導電助剤を添加して活物質層の抵抗を低減することが好ましい。

【0023】本発明のセパレータとしては、イオン伝導度として $10^{-5}$  S/cm以上であることが好ましく、さらに好ましくは $10^{-4}$  S/cm以上である。セパレータとして、電極との密着性に優れ、電極積層体として一体化の加工を経ても高いイオン伝導度を持つイオン伝導性ゲル材料を用いることができる。このゲル材料として、本発明においては、ポリ弗化ビニリデンおよび/または弗化ビニリデン共重合体を含むゲル分率20~80%のポリマーマトリックスに電解液を保持させたポリマーゲルを用いることが必要である。該ポリマーゲルはフレキシブルであり、電極との密着・一体化ができるため好ましい。また、ポリ弗化ビニリデンおよび/または弗化ビニリデン共重合体を20重量%以上含むことが好ましく、50重量%以上含むことがより好ましい。

【0024】この弗化ビニリデン共重合体の例として、弗化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体、弗化ビニリデン-トリフルオロエチレン共重合体を挙げることができる。ポリ弗化ビニリデン、弗化ビニリデン共重合体は電気化学的に安定な領域が広く、高強度であることから加工性、電池性能に優れ、セパレータ材料として好適である。

【0025】このポリマーの構造として、バルク、多孔質構造、発泡体構造、粉末焼結体、粉末圧縮体などの成形体に電解液を含浸した形態、ポリマーと電解液を溶媒や加熱溶融によって均一化した後所定の形状に成形した形態が用いられる。多孔構造の膜を用い、電極との積層一体化工程において該多孔構造が閉塞する場合においても、ポリマーが電解液に含浸されてイオン伝導性を発現するため、ポリオレフィンセパレータでみられたようなイオン輸送障害は起こらない。同じ理由で、独立気泡構造の発泡体ポリマーに電解液が含浸されたポリマーゲルにおいても良好なイオン伝導性を発現することができる。特に、この発泡体ポリマーに電解液が含浸したポリマーゲルは、貫通孔構造がないため根本的に液漏れがなく、その上高強度、高イオン伝導度であるためセパレータに好ましい。

【0026】上記したように、ポリマーマトリックス材料として、架橋されたポリ弗化ビニリデンや弗化ビニリデン共重合体およびこれらの混合物を含み、さらに他のポリマーとの混合物としても利用できる。この混合物における他のポリマーとして、電解液を含浸させた状態でイオン伝導性を有する材料が好ましく、例えばポリアクリロニトリル、ポリエチレンオキシド、ポリメタクリレートなどが挙げられる。本発明においてはポリ弗化ビニリデンや弗化ビニリデン共重合体及びこれらの混合物は架橋されていることが必要である。この架橋構造によつ

て積層一体化の加工における熱融着で溶融して完全にメルトフローすることを防ぐことができる。また、電池として誤作動により過充電や短絡などを起こした場合、急激な温度上昇を伴う場合においても、電極間短絡を助長することなく発熱暴走を阻止できるという性質を持ち、電池に高い安全性を付与できる。この架橋構造は、ポリマー成形体に電子線やγ線などの高エネルギー線照射を行い架橋させる方法、アルカリにより脱HFさせて生成した不飽和結合を用い、不飽和結合同士または、多官能性架橋剤を共存重合させて架橋させる方法が利用できる。中でも電子線架橋は工程が簡単で、量産性に優れるため好ましい。

【0027】該架橋構造は、未架橋体が溶解可能な溶剤で未架橋成分を抽出し、架橋成分と未架橋成分の重量比を求めることによって架橋成分の割合を求めることができる。本発明におけるゲル分率とは、この架橋成分の全ポリマーマトリックス量に対する割合を表した値であり、本発明の電池要素および電池におけるセパレータのポリマーマトリックスのゲル分率は、20%以上80%以下であることが必要である。このゲル分率が20%未満の場合、電極との積層一体化加工時や電池誤作動時においてメルトフローしてしまう。また、ゲル分率が80%を越える場合、短絡は起こらないが、電極とセパレータの密着性が充分でなく一体化が難しい。本発明のセパレータに用いられるポリ弗化ビニリデンや弗化ビニリデン共重合体を含む架橋されたポリマーマトリックスのゲル分率は、例えば、N-メチルピロリドン、ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシドまたはこれをベースとする混合溶剤で未架橋成分を抽出することにより求めることができる。

【0028】本発明に用いられるセパレータの厚さの範囲は、通常1~500 μmであり、好ましくは10~300 μm、さらに好ましくは20~150 μmである。本発明において電解液としては、リチウム塩を有機溶媒に溶解した溶液が用いられる。このリチウム塩としては、弗化ホウ酸リチウム、弗化リン酸リチウム、過塩素酸リチウム、弗化ヒ素酸リチウム、トリフルオロメタンスルホン酸リチウム、トリフルオロメタンスルホン酸リチウム、パーフルオロブタンスルホン酸リチウムなどのリチウム塩及びこれらの混合物、並びにこれらの塩の単独もしくは混合物の熔融塩が用いられる。この熔融塩の場合、室温で液状のものもあり、必ずしも電解液溶媒が含まれなくても利用可能である。また電解液溶媒として、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ブチレンカーボネートなどの環状カーボネート化合物、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、メチルエチルカーボネートなどの鎖状カーボネート、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル化合物、γ-ブチrolakton、プロピオラクトン、酢酸メチルなどのエステル化合物、アセトニトリル、プロピオニトリル



などのニトリル化合物、スルホラン、ホスファゼンなどの化合物などの単体、混合物、前記のポリマーマトリックスの液状オリゴマーやオリゴマーと溶媒の混合物などが用いられる。

【0029】セパレータと電極の積層前に、上記の電解液や電解液にポリマーマトリックス材料を溶解、分散した溶液やスラリー、電解液溶媒を前記の電極活物質表面に塗布、含浸させて電極とセパレータの密着性や電極活物質層のイオン移動を向上させることができる。また、電極とセパレータを積層後、電解液、電解液にポリマーマトリックス材料を溶解、分散した溶液、スラリー、電解液溶媒を含浸させることもできる。

【0030】次に、本発明のリチウムイオン二次電池要素を用いたリチウムイオン電池について説明する。本発明のリチウムイオン電池は、前記の正極、セパレータ及び負極が積層した構造で形成される。また、この正極および負極は電極活物質層と集電体から形成され、この集電体を通じて活物質層と電流の注入、放出を行なう。集電体には導電性材料からなる電極端子を設けることができるが、集電体の一部を加工して電極端子として用いることも可能である。従って、正極および負極の集電体に電極端子を接続した構造、集電体の一部を電極端子とした構造のいずれも利用できる。素電池として正極／セパレータ／負極からなるリチウムイオン二次電池要素単独のものや、この二次電池要素を直列または並列積層したものも利用できる。本発明の正極／セパレータ／負極の積層構造は少なくとも一箇所薄層領域でほぼ180°折り曲げられた折り曲げ構造である。該折り曲げ構造は体積充填率が高くできるため好ましい。この積層体構造は、外部からの保護、防湿の目的で外装体を設け、積層体構造を封止した構造とすることができる。

【0031】この外装体材料として、ポリマーシート積層体、金属缶が用いられる。特に、ポリマーシート積層体は、金属缶に比べて軽量であること、積層構造の素電池の種々の構造に対応したパッケージができることなどから好ましい。このポリマーシート積層体として、種々のポリマーと金属箔の積層体、ポリマー成形体が用いられる。このポリマーシート積層体として例えば、シーラント層／金属層／ポリマー層の構造が用いられる。この構造における、シーラント層形成に用いられるシーラントシートとして、ポリプロピレン、ポリエチレン、エチレン・ビニルアルコール共重合体、アイオノマーなどの炭化水素系ポリマーシートが用いられる。金属層の金属シートとしてアルミニウム、アルミニウム合金、銅、銅合金、ニッケル、ステンレスなどの金属シートが用いられ、このうちアルミニウム、アルミニウム合金は軽量、加工性に優れるため好ましい。また、ポリマ層形成に用いられるポリマーシートとして、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリフェニレンスルフィド、ポリフェニレンオキシド、脂肪族ポリアミ

ド、芳香族ポリアミド、ポリイミド、ポリエーテルケトン、塩化ビニリデン、フェノール樹脂などが用いられ、上記の金属シート、シーラントシートとラミネートしてポリマーシート積層体を作製することができる。

【0032】ポリマーシート積層体としてシーラント層／金属層／ポリマー層の構造のものを用いた場合はシーラント層側を向かい合わせて熱融着させ、シーラント層同士を接着、外装体を形成することができる。該外装体を用い、電極端子の一部を外部に露出させた構造で電池要素を該外装体でパッケージして電池を作製する。この際、電極端子と外装体を形成するポリマーシート積層体中の金属層との間で短絡が起こりやすいため、電極端子の周辺を絶縁処理された構造により電極端子間の短絡を防止することが好ましい。この防止方法として例えば、ポリマーシート積層体中の金属層の一部を除去した積層体や、シーラント層／金属層間に絶縁層を設けた積層体、封止部周辺の電極端子を絶縁処理した構造またはポリマーシート積層体を絶縁処理した構造などが用いられる。

【0033】本発明のリチウムイオン二次電池要素は、特にリチウムイオン二次電池に好適であるが、これにとどまらず鉛電池、アルカリ電池、ニッケル水素電池など種々の電池にも応用することが可能である。

【0034】

【発明の実施の形態】以下実施例で本発明を詳細に説明する。

【0035】

【実施例1】 $\text{LiCoO}_2$  長尺シート（平均粒径 $5\mu\text{m}$ の $\text{LiCoO}_2$  100重量部と、バインダーであるポリフッ化ビニリデン3重量部およびアセチレンブラック3重量部をN-メチルピロリドンに分散し、 $15\mu\text{m}$ アルミ集電体上に塗工、加熱プレスした膜厚 $110\mu\text{m}$ 片面塗工の正極シートを幅 $98\text{mm}$ にスリットしたもの）、ニードルコークス長尺シート（平均粒径 $10\mu\text{m}$ のニードルコークス100重量部、スチレンブタジエンラテックスの水分散スラリーを固形分換算で2重量部およびカルボキシメチルセルロースの水溶液を固形分換算で0.8重量部の割合で水に均一分散したスラリーを $12\mu\text{m}$ の銅集電体上に塗布、加熱プレスした膜厚 $115\mu\text{m}$ 片面塗工の負極シートを幅 $100\text{mm}$ にスリットしたもの）をそれぞれ正極、負極に用いた。この正極の長手方向に薄層領域（1a：長手方向の長さ $3\text{mm}$ で電極活物質層をエンドミルで研削し、薄層領域の電極活物質層の平均厚さは $5\mu\text{m}$ であった。）、平面領域（La：長手方向の長さ $32\text{mm}$ ）を交互に帯状に作製し、この平面領域8回とその間に7回の薄層領域が形成されたユニットで、長尺シートにおけるユニットの最初と最後の平面領域の外に長手方向の長さ $5\text{mm}$ で活物質層剥離（エンドミルで剥離、活物質層の平均厚さ $5\mu\text{m}$ とした。）して、集電体裏面（セパレータと接触している側と反対

側をいう。)に電極端子(アルミニウムシート、幅2mm、長さ120mm、30 $\mu$ m厚み)を超音波溶接で接合した後、絶縁層(活物質層側に膜厚50 $\mu$ m、幅4mm、長さ105mmのポリプロピレンシートを融着、電極端子側に幅5mm、長さ105mm、膜厚25 $\mu$ mのポリイミドシートテープを粘着)を設けた。一方、負極は長手方向に薄層領域(Lc:長手方向の長さ2mm、エンドミルで研削し、電極活物質層の平均厚さ11 $\mu$ mの薄層領域を形成した。)、平面領域(Lc:長手方向の長さ33mm)を交互に帯状に作製し、この平面領域8回とその間に薄層領域7回が形成されたユニットとして、長尺シートにおけるユニットの最初と最後に幅5mmで活物質層剥離(エンドミルで剥離、剥離後の活物質層平均厚さ10 $\mu$ m)して集電体裏面に電極端子(金属銅シート、幅2mm、長さ120mm、厚さ30 $\mu$ m)を超音波溶接で接合した後、絶縁領域(活物質層側に幅4mm、長さ105mm、膜厚50 $\mu$ mのポリプロピレンシートを融着、電極端子側に幅5mm、長さ105mm、厚さ25 $\mu$ mのポリイミドシートテープを粘着)を設けた。このようにして、正極および負極シートに平面領域/薄層領域/(平面領域/薄層領域)を6回/対面領域/絶縁領域をユニットとして、このユニットを繰り返して電極シートを作製した。

【0036】ポリフッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体(ヘキサフルオロプロピレン含量3重量%、エルファトケム社製カイナール2850)のバルクシート(膜厚50 $\mu$ m)に電子線照射(照射量10Mrad)を行い架橋処理した後、フロン(HFC-134a)を7重量部含浸、加熱延伸処理して得られた発泡体シート(発泡倍率4倍、膜厚60 $\mu$ m)に電解液としてエチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、 $\gamma$ -ブチラクトンを体積比1:1:2で混合したLiBF<sub>4</sub>の1.5モル/リットル溶液を含浸させたポリマーゲル(電解液含量75重量%、平均膜厚65 $\mu$ m、幅102mmの長尺シート)をセパレータとした。このセパレータ中の電解液成分をエタノールで1日抽出した後、乾燥してポリマーマトリックス量を求め、次いでポリマーマトリックスをステンレス金網に入れ、N-ジメチルアセトアミドとアセトンの混合溶媒(容積比7:3)で3時間ソックスレー抽出器で加熱還流して未架橋成分を抽出除去し、乾燥により架橋成分重量を求めた結果、ゲル分率として60%であることがわかった。

【0037】ついで、電極の平面領域の表面に上記の電解液をロールコーターで塗布した。塗布量は正極30g/m<sup>2</sup>、負極40g/m<sup>2</sup>とした。正極シートおよび負極シートを正極と負極の末端の位置合わせを行い、正極の平面領域が負極の平面領域に完全に向き合うようにして、この正極シートと負極シートの間にセパレータを挟み込み、加熱ロールのラミネータ(ロール温度130℃、ロール速度60mm/min)で積層一体化させ

た。次いで、積層体の絶縁領域をカッターで切断、薄層領域で折り曲げを行い二次電池要素を得た。折り曲げた二次電池要素は、幅102mm、長さ34mm、厚さ2.4mmで電極端子が片側からはみ出した構造であった。

【0038】この電池要素を、ポリマーシート積層体(ポリエチレンテレフタレート25 $\mu$ m、金属アルミニウムシート12 $\mu$ m、ポリプロピレン50 $\mu$ mを順次積層したシート)を袋状に加工したパッケージ(幅40mmの封筒状、長さ110mmの片面を幅3mmで融着して封止)に挿入して電極端子を外側にはみ出させて、真空引きを行いながら挿入部分を加熱シールして電池を作製した。シール後の電池の厚さは2.7mmであった。

【0039】電極端子を充放電機に接続して充放電試験(215mA定電流、4.2V定電位充電、215mA定電流放電をおこなった結果、初回放電量680mAh、平均電圧3.6V(2.45Wh)であり繰り返し充放電が可能であった。作製した電池を2mの高さからコンクリート床に100回落下させたが、電池の変形や電池から液漏れはみられず、試験後の充放電が可能であった。また、落下試験を施さない電池を充電状態で160℃に1時間保持して電位を追跡した結果、電極間の短絡はみられなかった。

【0040】

【実施例2】実施例1で用いた負極に代えてグラファイト長尺シート(平均粒径10 $\mu$ mのグラファイトMCM B(大阪ガス製)100重量部、スチレン-ブタジエンラテックスの水分散スラリーを固形分換算で2重量部およびカルボキシメチルセルロースの水溶液を固形分換算で0.8重量部の割合で水に均一分散したスラリーを12 $\mu$ mの銅集電体上に塗布、加熱プレスした膜厚85 $\mu$ m片面塗工の負極シートを幅100mmにスリットしたもの)を負極に用い、実施例1と同様にして薄層領域、平面領域を形成して電極を加工した。また、電極端子、絶縁領域を実施例1と同様に形成し、電極シートを得た。

【0041】実施例1で用いたポリフッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体の発泡体シート(発泡倍率4倍、膜厚60 $\mu$ m)に電解液としてエチレンカーボネート、 $\gamma$ -ブチラクトンを体積比1:1で混合したLiBF<sub>4</sub>の1.5モル/リットル溶液を含浸させたポリマーゲル(電解液含量76重量%、平均膜厚幅63 $\mu$ m、幅102mmの長尺シート)をセパレータとした。

【0042】ついで、電極の平面領域の表面に上記の電解液をロールコーターで塗布した。塗布量は正極30g/m<sup>2</sup>、負極40g/m<sup>2</sup>とした。正極シート及び負極シートを、正極および負極の末端の位置合わせを行い、正極の平面領域が負極の平面領域に完全に重なるよう向かい合わせて、この正極と負極の間にセパレータを挟み

込み、加熱ロールのラミネータ（ロール温度130℃、ロール速度60mm/min）で積層一体化させた。次いで、積層体の絶縁領域をカッターで切断、薄層領域で折り曲げを行い電池要素を得た。折り曲げた電池要素は、幅102mm、長さ34mm、厚さ2.2mmで電極端子が片側からはみ出した構造であった。

【0043】この電池要素を、実施例1と同様にしてポリマーシート積層体を袋状に加工したパッケージ（幅40mmの封筒状、長さ110mmの片面を幅3mmで融着して封止）に挿入して電極端子を外部にはみ出させて、真空引きを行いながら挿入部分を加熱シールして電池を作製した。シール後の電池の厚さは2.4mmであった。

【0044】電極端子を充放電機に接続して充放電試験（250mA定電流、4.2V定電位充電、250mA定電流放電）をおこなった結果、初回放電量790mAh、平均電圧3.7V（2.92Wh）であり繰り返し充放電が可能であった。同様にして電極積層体を切断、折り曲げを行い電池要素を作製、パッケージ化して電池を10セル作製した。これら電池の充放電を行った結果、初回重電量ばらつきは3%以内、平均放電量793mAhであった。従って、セルの平均体積エネルギー密度は277Wh/リットルであった。

【0045】作製した電池を2mの高さからコンクリート床に100回落下させた結果、電池の変形や液漏れはみられず、落下試験後の電池の充放電が可能であった。また、落下試験を施さない電池を充電状態で160℃に1時間保持して電位を追跡した結果、電極間の短絡はみられなかった。

【0046】

【実施例3】ポリフッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体（ヘキサフルオロプロピレン含量3重量%、エルフアトケム社製カイナール2850）17.3重量部、平均分子量200のポリエチレングリコール11.5重量部、ジメチルアセトアミド71.2重量部からなる溶液を作り、この溶液100gに対してポリオキシエチレンソルビタンモノオレエート（花王アトラス（株）製、商品名Tween80）を0.8ml加え、均一な溶液とした。該溶液をガラス板上にキャストして膜厚200μmの液膜を形成した。該液膜を70℃の水中に浸せき、凝固させた後、水、アルコールで洗浄後乾燥して膜厚52μm、空孔率75%の多孔質薄膜を作製した。次いで該薄膜に電子線照射（照射量10Mrad）を行い架橋処理した。実施例1と同様にして求めたゲル分率は58%であった。

【0047】電解液としてエチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、γ-ブチラクトンを体積比1:1:2で混合したLiBF<sub>4</sub>の1.5モル/リットル溶液を該薄膜に含浸させたポリマーゲル（電解液含量75重量%、平均膜厚幅65μm、幅102mmの長尺シ-

ト）を作製し、セパレータとした。ついで、電極の平面領域の表面に上記の電解液をロールコーターで塗布（塗布量は正極30g/m<sup>2</sup>、負極40g/m<sup>2</sup>）した。実施例1と同様にして、正極シートおよび負極シートを正極と負極の末端の位置合わせを行い、正極の平面領域が負極の平面領域に完全に向き合うようにして、この正極シートと負極シートの間にセパレータを挟み込み、加熱ロールのラミネータ（ロール温度130℃、ロール速度60mm/min）で積層一体化させた。次いで、積層体の絶縁領域をカッターで切断、薄層領域で折り曲げを行い二次電池要素を得た。折り曲げた二次電池要素は、幅102mm、長さ34mm、厚さ2.4mmで電極端子が片側からはみ出した構造であった。

【0048】この電池要素を、実施例1と同様のポリマーシート積層体を加工したパッケージに挿入して電極端子を外部にはみ出させて、真空引きを行いながら挿入部分を加熱シールして電池を作製した。シール後の電池の厚さは2.7mmであった。電極端子を充放電機に接続して充放電試験（215mA定電流、4.2V定電位充電、215mA定電流放電）をおこなった結果、初回放電量650mAh、平均電圧3.6V（2.34Wh）であり繰り返し充放電が可能であった。

【0049】作製した電池を2mの高さからコンクリート床に100回落下させた、電池の変形や電池から液漏れはみられず、試験後の充放電が可能であった。また落下試験を施さない電池を充電状態で160℃に1時間保持して電位を追跡した結果、電極間の短絡はみられなかった。

【0050】

【比較例1】実施例1と同様にして薄層領域、平面領域を形成して電極を加工した。また、電極端子、絶縁層を実施例1と同様に形成し、電極シートを得た。実施例1で用いたポリフッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体の発泡体シートに代えて25μm厚（空孔率40%）のポリエチレン微多孔膜に電解液としてプロピレンカーボネート、エチレンカーボネート、γ-ブチラクトンを体積比1:1:2で混合したLiBF<sub>4</sub>の1.5モル/リットル溶液を含浸させてセパレータとした。

【0051】ついで、電極の対面領域の表面に前記の電解液をロールコーターで塗布した。塗布量は正極30g/m<sup>2</sup>、負極40g/m<sup>2</sup>とした。正極および負極の末端の位置合わせを行い、正極の対面領域が負極の対面領域に完全に重なるようにして正極シートと負極シートを向かい合わせ、この正極シートと負極シートの間にセパレータとともに積層し、加熱ロールのラミネータ（ロール温度130℃、ロール速度60mm/min）で積層一体化させたが、電極シートとセパレータが密着しなかった。また両極間の集電体に端子を接合し、両極間の抵抗値を測定した結果、1MΩ以上の抵抗値であり充放電



できなかった。

# 【0052】

【比較例2】実施例3と同様にして作製した電子線架橋を施さない未架橋の薄膜に電解液を含浸した膜をセパレータとした。実施例1と同様に求めたゲル分率は0%であった。実施例3と同様に、電解液を塗布した電極シートと該セパレータを加熱ロールのラミネータ（ロール温度130℃、ロール速度60mm/min）で積層一体化させた。同様にして10枚の電池要素を作製した。この電池要素を、実施例1と同様のポリマーシート積層体を加工したパッケージに挿入して電極端子を外部にはみ出させて、真空引きを行いながら挿入部分を加熱シールして電池を作製した。シール後の電池の厚さは2.7mmであった。

【0053】電極端子を充放電機に接続して充放電試験（215mA定電流、4.2V定電位充電、215mA定電流放電）をおこなった結果、10個の電池のうち7個の電池で電極間短絡が発生していることがわかった。また、3個の電池は充放電可能であった（初回平均放电量540mAh、平均電圧3.6V（1.9Wh））。

【0054】作製した電池を2mの高さからコンクリート床に100回落下させた、電池の変形や電池から液漏れはみられなかったが、この試験後充放電した結果、電極間短絡が起こっており充電できなかった。また、落下試験を施さなかった電池を充電状態で160℃に1時間加熱して電位を追跡した結果、加熱中に電位が急激に低

下し、電極間が短絡した。

# 【0055】

【発明の効果】本発明は、パッキング効率が高く、コンパクトに充填された高エネルギー密度であり、高安全性、高信頼性の軽量、薄型化が容易なリチウム二次電池要素の提供が可能にした。また、本発明のリチウム二次電池要素は、生産性に優れ、産業上大いに有用である。

# 【0056】

## 【図面の簡単な説明】

# 【0057】

【図1】本発明の正極の一例の上面図および断面図である。

# 【0058】

【図2】本発明の薄層領域で折り曲げる前のリチウムイオン二次電池要素の一例の長手方向に垂直方向の断面図である。

# 【0059】

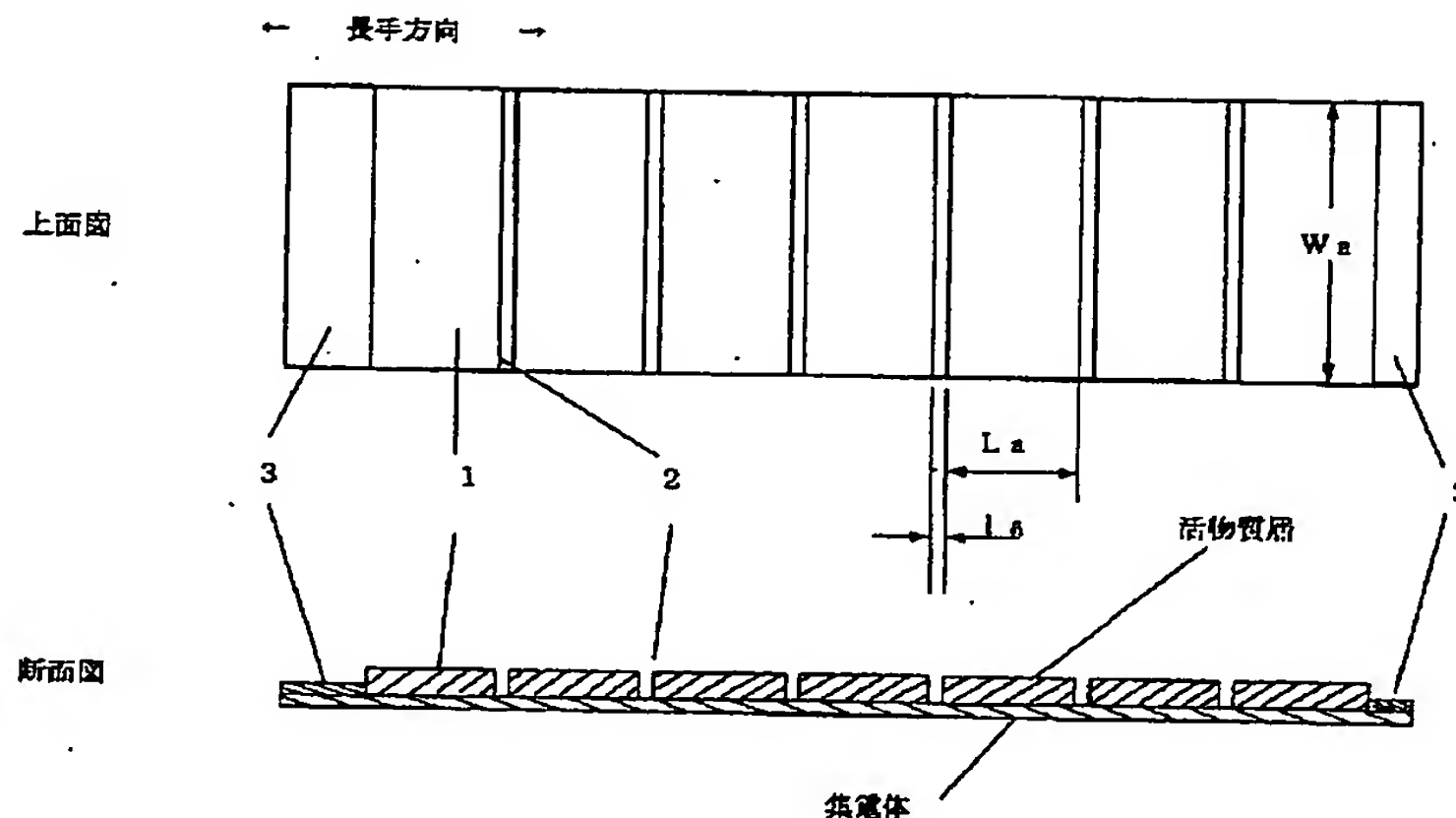
【図3】本発明の薄層領域で折り曲げる前のリチウムイオン二次電池要素の一例の長手方向に平行方向の断面図である。

# 【0060】

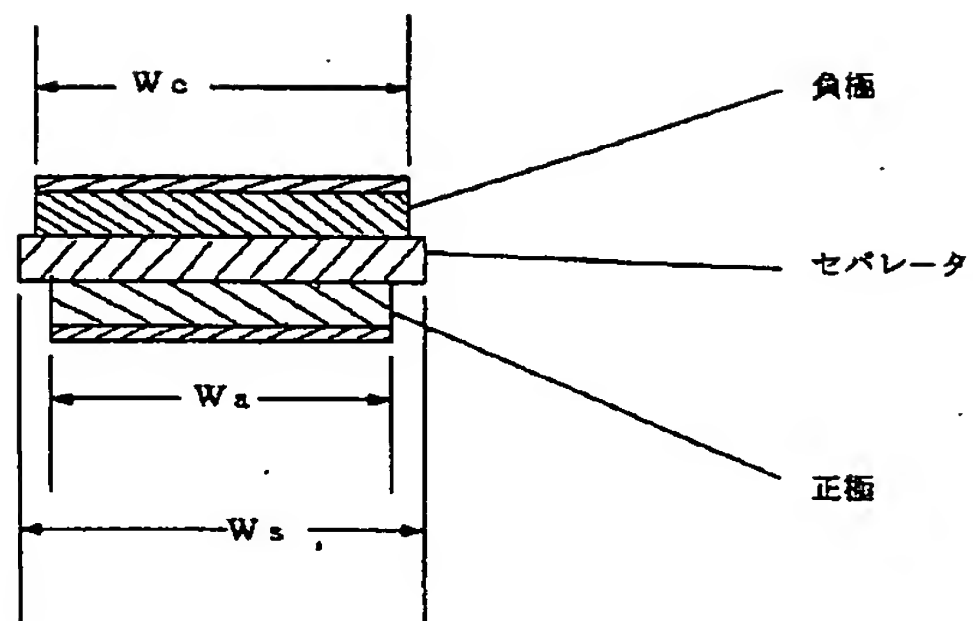
## 【符号の説明】

- 1 平面領域
- 2 薄層領域
- 3 絶縁領域

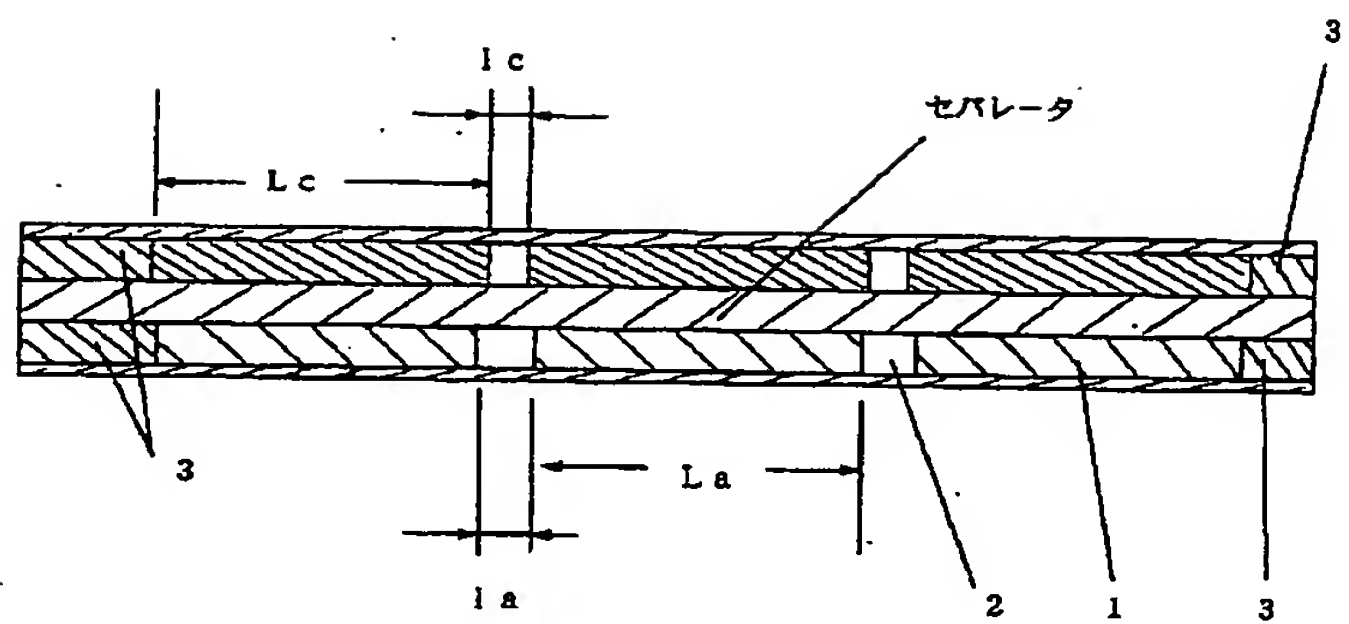
【図1】



【図 2】



【図 3】



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**